

#### PATENT APPLICATION

# FED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of

Akira SUGIMOTO, et al.

Appln. No.: 09/961,432

Confirmation No.: 8293

Filed: September 25, 2001

For:

ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DISPLAY PANEL

### **SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT**

Commissioner for Patents Washington, D.C. 20231

Sir:

Submitted herewith is one (1) certified copy of the priority document on which a claim to priority was made under 35 U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to acknowledge receipt of said priority document.

Respectfully submitted,

Registration No. 23,063

Group Art Unit: 2879

Examiner: Not Yet Assigned

SUGHRUE MION, PLLC 2100 Pennsylvania Avenue, N.W. Washington, D.C. 20037-3213

Telephone: (202) 293-7060 Facsimile: (202) 293-7860

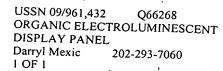
Enclosures:

Japan 2000-291125

DM/plr

Date: December 31, 2001

\$ 6





本 国 特 許 刀 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年 9月25日

出願番号

Application Number:

特願2000-291125

出 願 人
Applicant(s):

パイオニア株式会社

2001年 8月 3日

特 許 庁 長 官 Commissioner, Japan Patent Office





## 特2000-291125

【書類名】

特許願

【整理番号】

55P0070

【提出日】

平成12年 9月25日

【あて先】

特許庁長官殿

【国際特許分類】

H05B 33/22

【発明の名称】

有機エレクトロルミネッセンス表示パネル

【請求項の数】

9

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 パイオニア株式

会社 総合研究所内

【氏名】

杉本 晃

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 パイオニア株式

会社 総合研究所内

【氏名】

宮寺 敏之

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県鶴ヶ島市富士見6丁目1番1号 パイオニア株式

会社 総合研究所内

【氏名】

吉田 綾子

【特許出願人】

【識別番号】

000005016

【氏名又は名称】

パイオニア株式会社

【代理人】

【識別番号】

100079119

【弁理士】

【氏名又は名称】

藤村 元彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】

016469

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

図面 1

【物件名】

要約書 1

【包括委任状番号】 9006557

【プルーフの要否】

## 【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス表示パネル

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 順に積層された、第1表示電極、有機化合物からなる発光層を含む1以上の有機機能層、及び第2表示電極、からなる1以上の有機エレクトロルミネッセンス素子に接触して担持する樹脂基板と、からなる有機エレクトロルミネッセンス表示パネルであって、前記樹脂基板の表面を覆う無機バリア膜を有することを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項2】 前記無機バリア膜が覆う前記樹脂基板の表面は、少なくとも前記有機エレクトロルミネッセンス素子に接触する表面、前記有機エレクトロルミネッセンス素子間の表面、前記有機エレクトロルミネッセンス素子周囲の表面を含むことを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項3】 前記無機バリア膜が覆う前記樹脂基板の表面は、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に接触する表面の裏側の表面を含むことを特徴とする請求項1又は2記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項4】 前記無機バリア膜が覆う前記樹脂基板の表面は、全面であることを特徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項5】 前記無機バリア膜は窒化酸化シリコンからなることを特徴とすることを特徴とする請求項1~4のいずれか1記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項6】 前記無機バリア膜は、窒素/酸素の比率が0.13~2.8 8である窒化酸化シリコンからなることを特徴とする請求項1~5のいずれか1 記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項7】 前記無機バリア膜はスパッタ法により成膜されたことを特徴とする請求項1~6のいずれか1記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項8】 前記有機エレクトロルミネッセンス素子を背面から覆う封止

膜を有することを特徴とする請求項1~7のいずれか1記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

【請求項9】 前記封止膜は無機パッシベーション膜であり、前記有機エレクトロルミネッセンス素子全体は前記無機バリア膜及び前記封止膜により気密的に覆われていることを特徴とする請求項8記載の有機エレクトロルミネッセンス表示パネル。

#### 【発明の詳細な説明】

[0001]

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、電流の注入によって発光するエレクトロルミネッセンス(以下、ELともいう)を呈する有機化合物材料からなる発光層を含む1以上の薄膜(以下、有機機能層という)を備えた有機EL素子に関し、特に、複数の有機EL素子が樹脂基板上に形成された有機EL表示パネルに関する。

[0002]

# 【従来の技術】

有機EL素子は、透明基板上に、陽極の透明電極と、有機機能層と、陰極の金属電極とが順次積層されて構成される。例えば、有機機能層は、発光層の単一層、あるいは有機正孔輸送層、発光層及び有機電子輸送層の3層構造、又は有機正孔輸送層及び発光層の2層構造、さらにこれらの適切な層間に電子或いは正孔の注入層やキャリアブロック層を挿入した積層体である。

[0003]

複数の有機EL素子を用いた有機EL表示パネルとして、例えばマトリクス表示タイプのものや、所定発光パターンを有するものが知られている。

有機EL表示パネルの透明基板に、透明な樹脂、プラスチックを用いることが 提案されている。一方で、この有機EL表示パネルは、大気に晒されると、特に 有機EL素子の陰極層と有機機能層との界面では水分による特性劣化が顕著であ り、空気中の水分に触れると化学変化が起こり有機機能層と陰極間に剥離が生じ 、発光しない部分いわゆるダークスポットが生じるという問題がある。

[0004]

樹脂基板や樹脂フィルムはLCDなどのディスプレイ用や食品包装用に用いられることがあるが、その際には、内部への酸素や水分を遮断するためのバリア膜が成膜される。特に、ディスプレイ用樹脂基板には、透明性や防湿性の点から酸化シリコン( $SiO_2$ もしくは $SiO_x$ ( $x=1\sim2$ ))の蒸着やスパッタにより成膜したバリア膜が用いられている。

[0005]

有機EL素子を樹脂基板上に作製する場合にも素子の保存性を確実にするためには、水分を遮断するための防湿膜を必要とする。しかし、従来では、有機EL素子と樹脂基板との間に樹脂防湿膜を設けているが、素子周囲の樹脂基板の表面から水分が素子の有機機能層へ侵入する問題があった。

 $SiO_2$ や $SiO_x$ の蒸着膜、スパッタ膜では有機EL素子の劣化を抑制するに十分なバリア性(防湿性)を有していない。また、 $SiN_x$ のスパッタ膜を用いることで防湿性の高い膜を得ることが可能であるが、膜に着色があって透明性が悪く、膜の応力が大きくて基板が反ってしまったり、膜が割れてしまったりするため、実用的ではなかった。

[0006]

【発明が解決しようとする課題】

そこで本発明は、水分による発光特性が劣化しにくい有機EL素子及び有機E L表示パネルを提供することを目的とする。

[0007]

【課題を解決するための手段】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルは、順に積層された、第1表示電極、有機化合物からなる発光層を含む1以上の有機機能層、及び第2表示電極、からなる1以上の有機エレクトロルミネッセンス素子と、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に接触して担持する樹脂基板と、からなる有機エレクトロルミネッセンス表示パネルであって、前記樹脂基板の表面を覆う無機バリア膜を有することを特徴とする。

[0008]

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルにおいては、前記無機バリ

ア膜が覆う前記樹脂基板の表面は、少なくとも前記有機エレクトロルミネッセンス素子に接触する表面、前記有機エレクトロルミネッセンス素子間の表面、前記有機エレクトロルミネッセンス素子周囲の表面を含むことを特徴とする。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルにおいては、前記無機バリア膜が覆う前記樹脂基板の表面は、前記有機エレクトロルミネッセンス素子に接触する表面の裏側の表面を含むことを特徴とする。

#### [0009]

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルにおいては、前記無機バリア膜が覆う前記樹脂基板の表面は、全面であることを特徴とする。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルにおいては、前記無機バリア膜は窒化酸化シリコンからなることを特徴とすることを特徴とする。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルにおいては、前記無機バリア膜は、窒素/酸素の比率が0.13~2.88である窒化酸化シリコンからなることを特徴とする。

#### [0010]

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルにおいては、前記無機バリア膜はスパッタ法により成膜されたことを特徴とする。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルにおいては、前記有機エレクトロルミネッセンス素子を背面から覆う封止膜を有することを特徴とする。

本発明の有機エレクトロルミネッセンス表示パネルにおいては、前記封止膜は 無機パッシベーション膜であり、前記有機エレクトロルミネッセンス素子全体は 前記無機バリア膜及び前記封止膜により気密的に覆われていることを特徴とする

#### [0011]

#### 【発明の実施の形態】

以下に、本発明による実施の形態例を図面を参照しつつ説明する。

図1に示すように、実施形態の有機EL素子は、表面を窒化酸化シリコンからなる無機バリア膜12で覆われた樹脂基板10の上に順に積層された、第1表示電極13 (透明電極の陽極)、有機化合物からなる発光層を含む1以上の有機機

能層14、及び第2表示電極15(金属電極の陰極)、からなる。また、有機E L素子は、その第2表示電極15の背面から覆う封止膜16を有する。

### [0012]

無機バリア膜が覆う樹脂基板の表面は、少なくとも有機EL素子に接触する表面、有機EL素子間の表面、有機EL素子周囲の表面、有機EL素子に接触する表面の裏側の表面を含むことが好ましい。水分の有機機能層への侵入を防止するためである。樹脂基板の両面を無機バリア膜で覆うことにより、樹脂基板の反りを防止できる。

#### [0013]

無機バリア膜の窒化酸化シリコンは、窒素/酸素の比率が 0. 13~2.88 であることが好ましい。これ以上であると、膜の残留応力が高くなり、以下であると水分の有機機能層への侵入を十分防げなくなる。

例えば、有機EL素子の各々は、透明な樹脂基板10上にインジウム錫酸化物(ITO)からなる透明電極(第1表示電極)13を蒸着又はスパッタにて成膜する。その上に、銅フタロシアニンからなる正孔注入層、TPD(トリフェニルアミン誘導体)からなる正孔輸送層、A1q $_3$ (アルミキレート錯体)からなる発光層、Li2O(酸化リチウム)からなる電子注入層を順次、蒸着して有機機能層14を形成する。さらに、この上に蒸着によって、A1からなる金属電極(第2表示電極)15を透明電極13の電極パターンと対向するように成膜する。

#### [0014]

防湿性の高い膜を得るために、 $SiO_2$ 、 $SiO_x$ 、 $SiN_x$ の膜についてスパッタ法により成膜して実験を行い、無機バリア膜として窒化酸化シリコンが好適であるとことを確認し、その使用条件を検討した。

有機EL素子用の樹脂基板の試料を複数作製した。まず、ポリカーボネート(PC)を基材とした市販のプラスチック液晶用樹脂基板10に樹脂層11をコーティングして平滑化したのち、その両面に防湿用バリア膜12を表1に示すような成膜条件で成膜した。

## [0015]

# 【表1】

| 試料 | 防湿膜              | 膜厚     | 成膜レート       | 成膜温度        | 酸素:窒素<br>(原子数比) |
|----|------------------|--------|-------------|-------------|-----------------|
| A  | 組成<br>SiNx       | 2000 Ä | 100A/min    | 100℃        | 0:1             |
| B  | SiOxNy           | 2000Å  | 120A/min    | 100°C       | 1:1.4           |
| C  | SiOxNy           | 2000Å  | 140 Å / min | <b>100℃</b> | 1:0.55          |
| D  | SiO <sub>2</sub> | 2000 A | 90Å/min     | 100℃        | 1:0             |

(x=原子数)(y=原子数)

試料AのSiNx防湿膜については、膜の応力が大きいため、膜にクラックが入り、樹脂基板上に有機EL素子を構成することができなくなった。試料B~Dの成膜した樹脂基板上にそれぞれ透明電極13を成膜、パターニングし、さらに有機機能層14、金属電極15を成膜して有機EL素子を構成した。このあと、有機EL素子部の取り出し電極を除くすべての部分をプラズマCVD法による無機パッシベーション膜である窒化シリコン膜16で覆って封止した。

### [0016]

このようにして作製した有機EL素子を発光駆動し、光取り出し方向より観察した。これらの有機EL素子を60℃、95%の環境下にて260時間保存したのち、再び発光状態を観察した。

試料B、CosiOxNy防湿膜を成膜したものでは、発光状態に変化は見られなかった。試料 $DosiO_2$ 防湿膜を成膜したものでは、透明電極の端部付近が非発光であった。よって、窒化酸化シリコン防湿膜が好適であることが確認できた。

#### [0017]

さらに、窒化酸化シリコン防湿膜と樹脂基板の好適な組み合わせを検討した。 PC(ポリカーボネート)からなるプラスチック液晶用樹脂基板10の全面に防湿用バリア膜12として窒化酸化シリコン(SiOxNy)を2000Åづつ、表2に示すような酸素と窒素の混合比でそれぞれ成膜し、SiOxNy膜の可視光帯域の透過率をそれぞれ測定した。表2にその結果を示す。

## [0018]

【表2】

| 試料 | 窒素/酸素 (原子数比) |
|----|--------------|
| E  | 8. 50        |
| F  | 2: 88        |
| G  | 1. 3 7       |
| Н  | 0.55         |
| I  | 0.24         |
| J  | 0.13         |
| K  | 0.05         |

[0019]

# 【表3】

| 試料 | 透過率     |
|----|---------|
| E  | 5 8. 0  |
| F  | 67.7    |
| G  | 92.1    |
| Н  | 9 5 . 1 |
| I  | 96.6    |
| J  | 97.2    |
| K  | 98.2    |

試料Eについては、窒化酸化シリコンのバリア膜の応力が大きく、膜にクラックが入り、樹脂基板上に有機EL素子を構成することができなかった。

試料F~Kについては、樹脂基板上にそれぞれ透明電極13を、成膜、パターニングし、さらに有機機能層14、金属電極15と順に成膜した有機EL素子を構成した。このあと、有機EL素子の取り出し電極を除くすべての部分をプラズマCVD法による窒化シリコン膜16で覆って封止した。

### [0020]

このようにして作製した有機 E L 素子を発光駆動し、光取り出し方向より観察 した。これらの有機 E L 素子を60℃、95%の環境下にて260時間保存した のち、再び発光状態を観察した。

試料 F~ Jの防湿用バリア膜を成膜した素子では発光状態にほとんど変化は見られなかった。試料 Kの防湿用バリア膜を成膜したものでは透明電極の端部付近

に非発光部分が観察された。

[0021]

これらのことより、有機EL素子を樹脂基板上に構成するにあたって、窒素と酸素の混合割合が窒素/酸素の比率で0.13~2.88までの範囲にある窒化酸化シリコン膜を防湿用バリア膜として用いることで、透明性を確保しつつ高い保存性を有することが可能となることが確認された。

本発明では、樹脂基板上に有機EL素子を作製する場合、素子の保存性向上に不可欠な防湿用バリア膜に窒化酸化シリコン膜を用いたことにより、有機EL素子にとっても十分な防湿性を有する樹脂基板を得ることができる。

[0022]

また、応力や透明性の点においても、ディスプレイに応用するに十分な性能を 有しているため、樹脂基板を用いた薄くて軽い、しかもフレキシブルや有機EL ディスプレイを実現することができる。

図2は他の実施の形態の、複数の有機EL素子を備えた有機EL表示パネルの部分拡大背面図である。有機EL表示パネルは、図に示すように、窒化酸化シリコン膜で全体が被覆されたPC樹脂基板10上にマトリクス状に配置された複数の有機EL素子を備えている。透明電極層を含む行電極13 (陽極の第1表示電極)と、有機機能層と、該行電極に交差する金属電極層を含む列電極15 (第2表示電極)と、が窒化酸化シリコン膜(図3の12)上に順次積層されて構成されている。行電極は、各々が帯状に形成されるとともに、所定の間隔をおいて互いに平行となるように配列されており、列電極も同様である。このように、マトリクス表示タイプの表示パネルは、複数の行と列の電極の交差点に形成された複数の有機EL素子の発光画素からなる画像表示配列を有している。第1表示電極13は、島状の透明電極を水平方向に電気的に接続する金属バスラインから構成できる。有機EL表示パネルは樹脂基板10の窒化酸化シリコン膜(図3の12)上の有機EL素子の間に設けられた複数の隔壁7を備えている。第2表示電極15及び隔壁7の上には封止膜16が形成されている。有機機能層材料を選択して適宜積層して各々が赤R、緑G及び青Bの発光部を構成することもできる。

[0023]

図3に示すように、このパネルの有機EL素子の各々は、樹脂基板10上に順に積層された、第1表示電極13、有機化合物からなる発光層を含む1以上の有機機能層14、及び第2表示電極15、からなる。隔壁7は、樹脂基板から突出するように有機EL素子の間に設けられている。

さらに、有機EL表示パネルは、有機EL素子及び隔壁7を背面から覆う封止膜16の一部として無機パッシベーション膜を備えてもよい。これに防湿が保たれるので、樹脂からなる封止膜を当該無機パッシベーション膜上に設けることができる。また、樹脂封止膜最表面上に無機物からなる無機パッシベーション膜を再度設けることもできる。無機パッシベーション膜は上記の窒化酸化シリコン、窒化シリコンなどの窒化物、或いは酸化物又は炭素などの無機物からなる。封止膜を構成する樹脂としては、フッ素系やシリコン系の樹脂、その他、フォトレジスト、ポリイミドなど合成樹脂が用いられる。

[0024]

この封止構造を形成した有機EL表示パネルを、それぞれ室温及び高温高温(60℃、95%)下にて260時間放置した後であっても、封止構造にクラックや剥離を発生せず、有機EL表示パネルとしての発光動作も安定していた。

このように有機EL素子の樹脂基板側からの水分は基板を覆う無機バリア膜によって遮断される。

[0025]

上述した例においては、水分の遮断を行なうための無機バリア膜製法として、スパッタ法を用いたが、これに限られることはなく、プラズマCVD(Chemical Vapor Deposition)法、真空蒸着法などの気相成長法も適用可能である。

さらに上述した実施例においては、図2に示すように、透明樹脂基板10上の複数の透明電極13と金属電極15との交差する部分の有機機能層14すなわち発光部からなる単純マトリクス表示タイプの有機EL表示パネルを説明したが、本発明はアクティブマトリクス表示タイプのパネルの基板にも無機バリア膜は応用できる。

[0026]

【発明の効果】

本発明によれば、水や酸素の遮断が十分な封止構造を形成できるので、信頼性 の高い有機EL素子及び有機ELディスプレイを提供することができる。

# 【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明による有機EL素子の概略拡大断面図。

【図2】

本発明による有機EL表示パネルの概略拡大部分背面図。

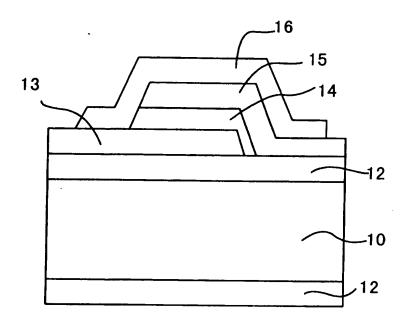
【図3】

図2の線AAに沿った有機EL表示パネルの概略部分断面図。

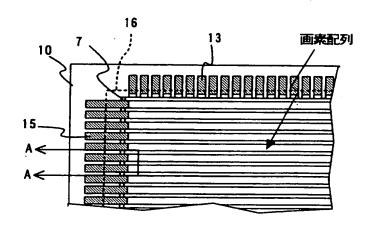
【符号の説明】

- 7 隔壁
- 10 樹脂基板
- 12 バリア膜
- 13 第1表示電極(透明電極)
- 14 有機機能層(発光層)
- 15 第2表示電極(金属電極)
- 16 封止膜

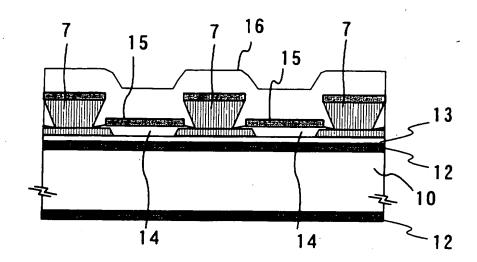
【書類名】図面【図1】



【図2】



【図3】



### 【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 水分による発光特性が劣化しにくい有機エレクトロルミネッセンス素子及び有機エレクトロルミネッセンス表示パネルを提供する。

【解決手段】 順に積層された、第1表示電極、有機化合物からなる発光層を含む1以上の有機機能層、及び第2表示電極、からなる1以上の有機エレクトロルミネッセンス素子と、有機エレクトロルミネッセンス素子に接触して担持する樹脂基板と、からなる有機エレクトロルミネッセンス表示パネルであって、樹脂基板の表面を覆う無機バリア膜を有する。

【選択図】 図1

## 出願人履歷情報

識別番号

[000005016]

1. 変更年月日

1990年 8月31日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都目黒区目黒1丁目4番1号

氏 名

パイオニア株式会社